

## 平成17年度科学研究費補助金（学術創成研究費）研究進捗状況報告書

|   |                                   |   |        |                         |        |                              |  |
|---|-----------------------------------|---|--------|-------------------------|--------|------------------------------|--|
| ふりがな  |                                   | いりふね てつお  |        |                         |        |                              |  |
| ①研究代表者氏名  |                                   | 入船 徹男   |        | ②所属研究機関<br>・部局・職        |        | 愛媛大学・地球深部ダイナミクス<br>研究センター・教授 |  |
| ③研究課題名  | 和文                                | 放射光と超高压技術による地球深部物質の探査   |        |                         |        |                              |  |
|   | 英文                                | Searching mineralogy of the Earth's deep interior using a combination of synchrotron radiation and high-pressure technology |        |                         |        |                              |  |
| ④研究経費<br>(直接経費)<br>18年度以降は内約額<br>単位:千円  | 平成15年度                            | 平成16年度  | 平成17年度 | 平成18年度                  | 平成19年度 | 総合計                          |  |
|   | 71,900                            | 74,900  | 74,200 | 65,300                  | 52,000 | 338,300                      |  |
| ⑤研究組織 (研究代表者及び研究分担者)  |                                   |   |        |                         |        |                              |  |
| 氏名  | 所属研究機関・部局・職                       |   | 現在の専門  | 役割分担 (研究実施計画に対する分担事項)   |        |                              |  |
| 入船徹男  | 愛媛大学・地球深部ダイナミクス<br>研究センター・教授      |   | 地球内部物性 | 研究全般・超高压発生実験            |        |                              |  |
| 趙大鵬   | 愛媛大学・地球深部ダイナミクス<br>研究センター・教授      |   | 地震学    | 高温高压物性データと地震波速度・密度構造の対比 |        |                              |  |
| 井上徹   | 愛媛大学・地球深部ダイナミクス<br>研究センター・助教授     |   | 地球内部物性 | 高压下での弾性波速度測定・放射光実験      |        |                              |  |
| 土屋卓久  | 愛媛大学・地球深部ダイナミクス<br>研究センター・助教授     |   | 地球内部物性 | 高压相の安定性と物性のシミュレーション     |        |                              |  |
| 大藤弘明  | 愛媛大学・地球深部ダイナミクス<br>研究センター・研究機関研究員 |   | 実験鉱物学  | 高压相の焼結実験・電顕観察           |        |                              |  |
| 山崎大輔  | 岡山大学・地球物質科学研究<br>センター・助教授         |   | 地球内部物性 | 超高压発生実験・放射光実験           |        |                              |  |
| ⑥当初の研究目的 (交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。)  |                                   |   |        |                         |        |                              |  |
| <p>本研究の目的は地球深部、特にマントル遷移層（深さ 410~660km）および下部マントル（660~2900km）、更にはマントル-核境界をも視野にいた領域における物質構成を、精密な実験データに基づき解明することである。このために放射光強力 X 線と超高压実験技術を組み合わせた新しい技術の開発をおこない、観測により最も良く決定されている地球深部物性である密度および地震波（弾性波）速度を、広範な圧力・温度の関数として高精度で決定することをめざす。この目的を達成するために、以下の2つの技術目標を設定する。</p> |                                   |   |        |                         |        |                              |  |
| <p>1) 下部マントル深部領域までの相転移観察と、放射光 X 線その場観察による高压相の密度変化の精密決定</p>  |                                   |   |        |                         |        |                              |  |
| <p>2) 高温高压下超音波測定技術と放射光 X 線その場観察法を組み合わせた、高压相の弾性波速度変化の精密決定</p>  |                                   |   |        |                         |        |                              |  |
| <p>このように、放射光と超高压実験の新しい技術開発を基盤として、マントル深部の物質構成を明らかにし、放射光地球深部物質科学の創成を図る。また、より高い圧力下での物質合成と物性測定法の確立により、材料科学や物性科学に関連した学際的分野の新たな研究の展開もめざすものである。</p>  |                                   |   |        |                         |        |                              |  |

⑦これまでの研究経過

I 本研究は、学術創成研究費の趣旨の3つの観点のうち、どの観点到に主眼を置いて研究を行っているかについてお書きください。

本研究は超高压発生・超音波測定・放射光を組み合わせた革新的技術開発に基づくものであり、その結果は地球科学のみならず、材料科学等への応用などにより学際的研究領域の創成が期待される。また、第3世代放射光を利用した高压関連科学への応用はアメリカ、ヨーロッパを中心に本格的に開始されているが、我が国独自に開発されたマルチアンビル高压装置との組み合わせによる本研究課題は、世界の先端を行くものであり、諸外国からその成果に強い期待がよせられている。特に焼結ダイヤモンドアンビルを用いた超高压発生は我が国の独断場であり、そのさらなる進展には我が国のリーダーシップが求められている。本研究ではこのように学術創成研究費の趣旨のうち(1)の学際性と革新性および(3)の国際性に主眼をおいた研究を展開している。

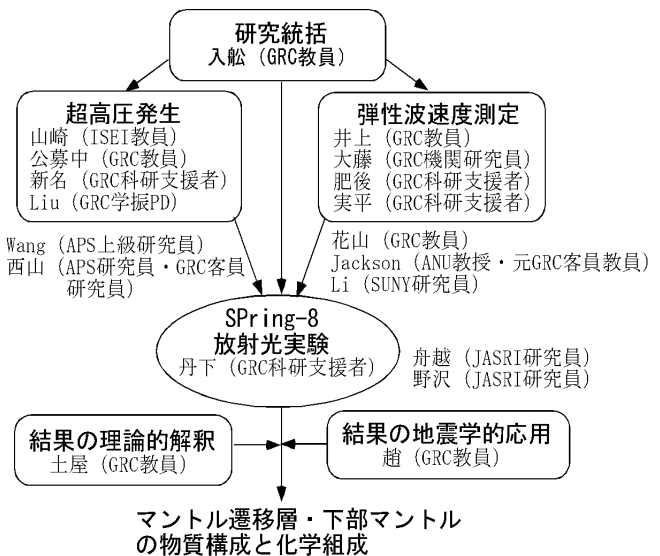
II 研究の進捗状況について、必要に応じて図表等を用いながら、研究組織内の連携状況を含め、具体的に記入してください。

本研究は地球深部物質科学の新展開を図るために、超高压実験と放射光を組み合わせた2つの基盤的技術を開発し、これを地球深部物質の解明に適用することを重要な目的としている。

第1の課題である下部マントル深部に至る条件下での相転移および高压相の密度精密測定に関しては、焼結ダイヤモンドアンビルを用いた実験技術の開発により、従来35万気圧程度に留まっていたマルチアンビル装置の発生圧力限界を倍増させる70万気圧の達成を当初の目標とした。本研究が開始されて2年あまりの間に、室温では約60万気圧の圧力発生を達成するとともに、2500Kに至る高温下で50万気圧近い高压発生が可能になった。この技術に基づき、沈み込む地殻関連物質である $KAlSi_3O_8$ や $MgAl_2O_4$ の新しい高压相を発見するなど、地球深部科学上重要な成果があがりつつある。また将来的なより高い圧力発生を目指し、代表者らにより開発された超硬度ナノダイヤモンド焼結体の大型化、高品質化、機能付加などの学際的研究がおこなわれ、新しい進展がみられている。

第2の課題である超音波測定と放射光を組み合わせた高温高压発生は、本研究開始当初世界で唯一ニューヨーク州立大学のグループが手掛けており、10万気圧1000度C程度の上部マントル条件までの測定が可能になりつつあった。本研究では同大学との共同研究により、その超音波測定技術を積極的に取り入れるとともに、これまで代表者らが開発してきた高压相の焼結体合成技術や放射光実験技術と組み合わせることにより、これをはるかに凌ぐ18万気圧1500度Cというマントル遷移層に至る条件下での測定を可能にした。このような高い温度圧力下での超音波・放射光X線の同時測定例は報告されておらず、他の追従を許さぬ技術開発が当初の年度目標以上に順調にすすんでいる。この結果、マントル遷移層の主要高压相であるリングウッドイトの高温高压下での弾性波速度が世界で初めて直接測定された。

研究体制の面では、第1の課題は山崎助手と新名研究員を中心とし、また第2の課題は井上助教授と肥後・大藤研究員を中心として基礎的な実験技術の開発がすすめられ、SPring-8における放射光実験においては代表者の指揮のもと、SPring-8に常駐している丹下研究員とともにこれらの両者が一体となって実験を進めている。また、実験的に得られた高压相の弾性波速度や密度を観測データと対比するため、グローバル地震学を専門とする趙教授を分担者に加えている。更に、本年4月から赴任した土屋助教授を分担者として加え、実験的に得られた高压相の構造や物性に対して、第一原理計算による物理的解釈をおこない、地球深部物質科学のより総合的な研究展開を図っている。尚、山崎助手は本年4月に岡山大学助教授として転出したが、引き続き分担者として共同研究をすすめるとともに、現在後任助手の選考中であり研究の遂行に特に支障はない。



III その他

「放射光高压地球物質科学」分野の創成と国際的共同研究の展開にむけ、関連分野の世界一流の研究者を招聘し、国内の他大学等の教員・若手研究員・学生も参加を呼び掛けて各2日間程度の5回の「国際レクチャー」、11回の「国際セミナー」をおこなった。この中で本研究にかかわる討論、また途中経過の発表や共同研究の打ち合わせ等もおこなった。また、本研究の成果は随時地球深部ダイナミクス研究センター(GRC)のHPに掲載するとともに、研究進行状況をGRC発行(年3回)のニュースレターに毎回公表して情報発信にも努めている。

## ⑧特記事項

〔 これまでの研究において得られた、独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、学問的・学術的なインパクト等特記すべき事項があれば記入するとともに、推薦者の期待がどの程度達成されつつあるかについて記入してください。 〕

1) 焼結ダイヤモンドアンビルを用いた超高压下での放射光その場観察実験に関しては、当初の目標（70 万気圧）に向けて着実に前進している。また、2500K という高温領域における数時間におよぶ安定な加熱が、50 万気圧近い圧力下で可能になった。これらの温度圧力の発生と X 線その場観察実験は、マルチアンビル装置としては世界で最先端を行く技術であり、これにより下部マントル領域における沈み込むスラブ関連物質中の新しい相転移を既に2つ発見しており、この手法の有用性が明らかになっている。従来この圧力領域における実験は、アメリカで開発されたダイヤモンドアンビル装置の独断場であったが、非常に微量の試料を扱うこの装置には様々な限界がある。本研究により、我が国で開発されたマルチアンビル装置の大容量という利点を生かし、上記の相転移を1つの例として、ダイヤモンドアンビル装置では不可能であった地球深部物質の探究への新しい道が開かれつつある。

2) 一方でマルチアンビル装置とダイヤモンドアンビル装置を組み合わせた、新しい概念の“6-8-2 三段加圧方式”の実現をめざした予備的実験をおこない、50 万気圧を越える圧力の発生に成功している。現在のところ第3段アンビルには単結晶ダイヤモンドを用いているが、これを代表者らが開発した超高硬度ナノダイヤモンド焼結体に置き換えることにより、更に100 万気圧も展望した超高压発生を試みる予定である。この研究課題は極めて独創性・新規性に富んだものであるが、アンビル材料である超高硬度ナノダイヤモンド焼結体の合成を自らおこないながら技術開発をすすめており、実際にこの新しい材料がアンビル材として利用できるのは今年後半から来年頃になる見込みである。なお、この超高硬度ナノダイヤモンド焼結体の合成により、代表者の入船は平成 16 年度「石川カーボン賞」を受賞し、住友電工（株）との共同研究により難加工物切削材料としての製品化にむけた取り組みが開始されている。

3) 本研究の放射光 X 線（回折、イメージング）と超音波測定を高温高压下でおこなうという取り組みは、予想以上に早いペースで技術的な開発が進んでいる。本研究で採用したパルスエコー法による弾性波速度測定法は、オーストラリア国立大学の研究者により開発され、ニューヨーク州立大の研究グループによりマルチアンビル装置に適用された。この弾性波測定法自体は、このように海外で発展してきたものである。しかし、これを代表者らの超高压・高温発生技術および SPring-8 における放射光実験と組み合わせることにより、本研究が開始されて2年あまりという短期間の間に、既に世界をリードする温度圧力条件での弾性波速度測定に成功したことは特筆に値する。

地球内部物性研究の父とも称される F. Birch は 1952 年に発表された著名な論文で、「マントル遷移層こそ、マントル全体の構造や運動を解明する鍵である」と述べている。地球深部における最も重要な観測量は地震波速度であり、本研究によりマントル遷移層に対応する温度圧力条件での主要な高压相の弾性波速度精密測定が完了すれば、これまで様々な議論があったマントルのこの領域の物質構成や化学組成が初めて定量的に明らかになると期待される。

以上のように、本研究課題は当初の目的に沿って順調に当面の目標を達成しつつあり、今後研究基盤となる新しい実験技術を確立するとともにその応用により、地球深部の物質科学に関する様々な新しい知見が得られるものと確信する。

⑨研究成果の発表状況

〔この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文（掲載が確定しているものを含む。）の全著者名、論文名、学協会誌名、巻（号）、最初と最後のページ、発表年（西暦）、及び国際会議、学会等における発表状況について記入してください。〕

- 1) Irifune, T., Kurio, A., Sakamoto, S., Inoue, T. and Sumiya, H. (2003) Ultrahard polycrystalline diamond from graphite, *Nature*, 421, 599-600.
- 2) Yamazaki, D. and Irifune T. (2003) Fe-Mg interdiffusion in magnesiowustite up to 35 GPa. *Earth Planet. Sci. Lett.*, 216, 301-311.
- 3) Wang, J., Sinogeikin, S. V., Inoue, T., Bass, J. D. (2003) Elastic properties of hydrous ringwoodite, *Am. Mineral.*, 88, 1608-1611.
- 4) Irifune, T., Kurio, A., Sakamoto, S., Inoue, T., Sumiya, H., and Funakoshi, K. (2004) Formation of pure polycrystalline diamond by direct conversion of graphite at high pressure and high temperature, *Phys. Earth Planet. Inter.*, 143, 593-600.
- 5) Irifune, T. and Sumiya, H. (2004) Nature of polycrystalline diamond synthesized by direct conversion of graphite using Kawai-type multianvil apparatus, *New Dia. & Front. Carbon Tech.*, 14, 313-328.
- 6) Isshiki, M., Irifune, T., Hirose K., Ono, S., Ohishi, Y., Watanuki, T., Nishibori, E., Takata, M., and Sakata, M. (2004) Stability of magnesite and its new high-pressure form in the lower mantle, *Nature*, 427, 60-62.
- 7) Nishiyama, N., Irifune, T., Inoue, T., Ando, J., Funakoshi, K., and Utsumi, W. (2004) Precise determination of phase transitions in pyrolite across the 660 km seismic discontinuity by in situ X-ray diffraction and quench experiments, *Phys. Earth Planet. Inter.*, 143, 185-199.
- 8) Sueda, Y., Irifune, T., Nishiyama, N., Rapp, R. P., Ferroir, T., Onozawa, T., Yagi, T., Merkel, S., Miyajima, N., Funakoshi, K. (2004) A new high-pressure form of  $KAlSi_3O_8$  under lower mantle conditions, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L23612, doi:10.1029/2004GL021156.
- 9) Sumiya H., Irifune, T., Kurio, A., Sakamoto, S., and Inoue, T. (2004) Microstructure features of polycrystalline diamond synthesized directly from graphite under static high pressure, *J. Mat. Sci.*, 39, 445-450.
- 10) Sumiya, H. and Irifune, T. (2004) Indentation hardness of nano-polycrystalline diamond prepared from graphite by direct conversion, *Diamond Relat. Mater.*, 13, 1771-1776.
- 11) Urakawa, S., Someya, K., Terasaki, H., Katsura, T., Yokoshi, S., Funakoshi, K., Utsumi, W., Katayama, Y., Sueda, Y., and Irifune, T. (2004). Phase relationships and equations of state for FeS at high pressures and temperatures and implications for the internal structure of Mars, *Phys. Earth Planet. Inter.*, 143, 469-479.
- 12) Yamada, A., T. Inoue and T. Irifune (2004) Melting of enstatite from 13 to 18 GPa under hydrous conditions, *Phys. Earth Planet. Inter.*, 147, 45-56.
- 13) Zhao, D. (2004) Global tomographic images of mantle plumes and subducting slabs: insight into deep Earth dynamics, *Phys. Earth Planet. Inter.*, 146, 3-34.
- 14) Zhao, D., J. Lei (2004) Seismic ray path variations in a 3-D global velocity model, *Phys. Earth Planet. Inter.*, 141, 153-166.
- 15) Nishiyama, N., Wang, Y., Uchida, T., Irifune, T., Rivers, M. L., Sutton, S. R. (2005) Pressure and strain dependence of strength of sintered polycrystalline  $Mg_2SiO_4$  ringwoodite, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L04307, doi:10.1029/2004GL022141.
- 16) Irifune, T., Isshiki, M., Sakamoto, S. (2005) Transmission electron microscope observation of the high-pressure form of magnesite retrieved from laser heated diamond anvil cell, *Earth Planet. Sci. Lett.* (in press).
- 17) Fukui, H., Inoue, T., Yasui, T., Katsura, T., Funakoshi, K. and Ohtaka, O. (2005) Decomposition of brucite up to 20 GPa: evidence for high MgO-solubility in the liquid phase, *Eur. J. Mineral.*, 17, 261-267.
- 18) Yamazaki, D., Okamoto, M., Irifune, T. (2005) Grain growth kinetics of ringwoodite and its implication for rheology of the subducting slab, *Earth Planet. Sci. Lett.* (in press).
- 19) Ferroir, T., Onozawa, T., Yagi, T., Merkel, S., Miyajima, N., Nishiyama, N., Irifune, T., Kikegawa, T. (2005) Equation of state and phase transition in K-hollandite at high pressure, *Am. Mineral.* (in press).

その他国際誌に掲載あるいは印刷中計48編、国内誌掲載論文12編、著書1冊（分担執筆）、国際会議発表42件（うち招待講演14件）、国内学会発表105件